

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

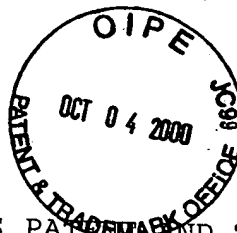
Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

HOS-57



PATENT #:

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the application of: Naochika KOGURE, et al.

Serial No.: 09/629,949

Group: 1731

Filed: August 1, 2000

For: MULTI-LAYER EXPANSION-MOLDED ARTICLE OF POLYPROPYLENE RESIN, PRODUCTION PROCESS THEREOF, AND CONTAINER, SHOCK-ABSORBING MATERIAL FOR AUTOMOBILE AND AUTOMOTIVE MEMBER FORMED OF THE MULTI-LAYER EXPANSION-MOLDED ARTICLE OF POLYPROPYLENE RESIN

October 5, 2000

The Hon. Commissioner of Patents  
and Trademarks  
Washington, D.C. 20231

REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 USC §119

Sir:

Applicants are enclosing herewith the following certified priority document for use in claiming priority of the same under the provisions of 35 USC §119(a)(d):

Japanese Application No. 11-225346  
filed August 9, 1999.

Applicants hereby claim priority of the above.

Respectfully submitted

SHERMAN & SHALLOWAY

*Perry Carvellas*

Perry Carvellas  
Attorney for Applicants  
Reg. No. 19,637

SHERMAN & SHALLOWAY  
P.O. Box 788  
Alexandria, Virginia 22313  
(703) 549-2282

TECHNOLOGY CENTER 1700

OCT -6 2000

RECEIVED

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application:

1 9 9 9 年 8 月 9 日

出 願 番 号  
Application Number:

平成 1 1 年 特 許 願 第 2 2 5 3 4 6 号

出 願 人  
Applicant (s):

株式会社ジェイエスピー

RECEIVED  
OCT - 6 2000  
TECHNOLOGY CENTER 1700

2 0 0 0 年 8 月 2 5 日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Patent Office



出 証 番 号 出 証 特 2 0 0 0 - 3 0 6 8 1 1 7

【書類名】 特許願

【整理番号】 P2577

【提出日】 平成11年 8月 9日

【あて先】 特許庁長官 伊佐山 建志 殿

【発明者】

    【住所又は居所】 栃木県宇都宮市上横田町 8 0 8 - 1   メゾンドキューブ  
                            D棟 2 0 1

    【氏名】 小暮 直親

【発明者】

    【住所又は居所】 栃木県今市市森友 1 1 2 7 - 7 0

    【氏名】 極楽 広行

【発明者】

    【住所又は居所】 栃木県宇都宮市鶴田町 1 7 0 4 - 2 5   テラスハウスA  
                            - 1 0 2

    【氏名】 高橋 誠治

【発明者】

    【住所又は居所】 栃木県宇都宮市駒生町 1 6 6 9   若葉ハイツ 2 0 1

    【氏名】 今成 大典

【発明者】

    【住所又は居所】 栃木県宇都宮市砥上町 1 1 2 6 - 5

    【氏名】 北浜 卓

【特許出願人】

    【識別番号】 000131810

    【氏名又は名称】 株式会社ジェイ エス ピー

【代理人】

    【識別番号】 100077573

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 細井 勇

    【電話番号】 03-5565-1221

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011877

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【物件名】 図面 1

【包括委任状番号】 9710354

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体及びその製造方法、並びに容器

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 樹脂発泡層の少なくとも外面に樹脂層を有する多層パリソンを、該パリソン最内面同志が少なくとも一部において融着するように成型型にて成形して得られる、ポリプロピレン系樹脂発泡層の表面にポリプロピレン系樹脂層を有する発泡成形体であって、発泡成形体の上記発泡層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／10分）とが下記（1）式の関係を満たすとともに、発泡成形体の上記樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFRが0.3（g／10分）以上の場合には、該樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／10分）とが、下記（2）式の関係を満たし、発泡成形体の上記樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFRが0.2（g／10分）以上、0.3（g／10分）未満の場合には、該樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MTが10（gf）以上であることを特徴とする多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体。

【数 1】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.66 \quad \cdots (1)$$

【数 2】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.47 \quad \cdots (2)$$

【請求項 2】 発泡成形体の発泡層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／10分）とが下記（3）式の関係を満たすとともに、発泡成形体の樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFRが0.5（g／10分）以上の場合には、該樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／

10分)とが、下記(4)式の関係を満足し、発泡成形体の樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト:MFRが0.2(g/10分)以上、0.5(g/10分)未満の場合には、該樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力:MTが10(gf)以上であることを特徴とする請求項1記載の多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体。

【数3】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.79 \quad \dots (3)$$

【数4】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.69 \quad \dots (4)$$

【請求項3】 発泡成形体のポリプロピレン系樹脂層の厚みが100μm～10mmであり、発泡成形体全体の密度が20～400kg/m<sup>3</sup>であることを特徴とする請求項1又は2記載の多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体。

【請求項4】 溶融張力:MT(gf)とメルトフローレイト:MFR(g/10分)とが下記(5)式の関係を満足するポリプロピレン系樹脂に発泡剤を添加し溶融混練して得られる発泡性溶融樹脂と、メルトフローレイト:MFRが0.3(g/10分)以上であって且つ溶融張力:MT(gf)とメルトフローレイト:MFR(g/10分)とが、下記(6)式の関係を満足するか、或いはメルトフローレイト:MFRが0.1(g/10分)以上、0.3(g/10分)未満であって且つ溶融張力:MTが10(gf)以上のポリプロピレン系樹脂を溶融混練して得られる溶融樹脂とを共押出することにより、上記発泡性溶融樹脂が発泡してなる樹脂発泡層の少なくとも外面に、上記溶融樹脂よりなる樹脂層を有する多層バリソンを形成し、次いで該バリソン最内面同志が少なくとも一部において融着するように成型にて成型してポリプロピレン系樹脂発泡層の表面にポリプロピレン系樹脂層を有する発泡成形体を得ることを特徴とする多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体の製造方法。

【数5】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.66 \quad \dots (5)$$

【数6】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.47 \quad \dots (6)$$

【請求項 5】 請求項 1 又は 2 記載の多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体よりなる容器であって、全体の密度が  $30 \sim 400 \text{ kg/m}^3$ 、ポリプロピレン系樹脂層の厚みが  $200 \mu\text{m} \sim 5 \text{ mm}$ であることを特徴とする容器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ポリプロピレン系樹脂発泡層の表面にポリプロピレン系樹脂層を備えた発泡成形体であって、例えば床やドア等の軽量断熱パネル、パレット、容器、自動車部材等として用いられる多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来から、樹脂発泡層の表面に熱可塑性樹脂層が形成された、種々の形状の多層樹脂発泡成形体が知られているが、近年、ごみ問題に対する関心が高まりつつあり、従来使い捨てされていた発泡ポリスチレン樹脂製魚箱などを、ポリプロピレン系樹脂発泡層の表面にポリプロピレン系樹脂層を形成した多層樹脂発泡成形体製とすることで、蒸気滅菌可能なリターナブル容器として流通させることが求められるようになってきた。また、自動車部材等においてもリサイクル性、強度、軽量性、断熱性、吸音性の面から、上記と同様の表面にポリプロピレン系樹脂層を有する多層樹脂発泡成形体製の部材で構成することが求められている。

【0003】

この種の多層樹脂発泡成形体として、熱可塑性樹脂にて中空構造の成形体を成形して樹脂層とし、その内部の空洞部に、ウレタン樹脂を注入したり樹脂発泡粒子などを充填成形する等の方法（特公昭 5 8 - 1 0 2 1 7 号公報、特開平 6 - 3 3 9 9 7 9 号公報等）により得られるものが知られている。しかしながら、これらの方法は、表面層となる樹脂層の成形工程と、該樹脂層内部に発泡層を形成する工程とが別工程となり、成形工程が複雑になったり、特殊な成形機が必要となってしまう、安価な多層樹脂発泡成形体を提供するのは困難であった。

【0004】



上記の問題を解決し得る方法として、樹脂発泡層の表面に熱可塑性樹脂層を有する中空の多層パリソンを金型で圧縮しながら成形し、該パリソンの対向する内面を融着させた多層樹脂発泡成形体を得る方法も提案されている（特公昭 6 2 - 2 7 9 7 8 号公報、特開平 6 - 3 1 2 4 4 9 号公報等）。

【0 0 0 5】

しかしながら上記したような多層パリソンを金型で圧縮しながら成形する方法では、均一な厚みの樹脂層を有する発泡成形体を得ることが難しく、発泡成形体表面に凹凸が発生して外観を損ねたり、容器等の比較的絞り比の大きなものを成形する場合には樹脂層に亀裂が生じたり穴があいてしまうという問題があった。また、基材樹脂としてポリプロピレン系樹脂を使用すると、密度  $0.4 \text{ g/cm}^3$  以下という低密度の発泡層を有するものを得ることが困難であり、発泡層を低密度化しようとする、発泡層を構成している気泡の破泡や連泡化が起こり易い等の問題を有し、いくつかの解決すべき課題を有するものであった。

【0 0 0 6】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記従来技術の欠点に鑑み、発泡層表面の樹脂層となる成形体を製造後、その中に発泡体を注入する等の複雑な工程が不要であり、外観が奇麗であり、軽量性、機械的強度、断熱性、緩衝性、耐薬品性、リサイクル性等に優れた多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体及びその製造方法、並びに容器を提供することを目的とする。

【0 0 0 7】

【課題を解決するための手段】

即ち本発明の多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体は、樹脂発泡層の少なくとも外面に樹脂層を有する多層パリソンを、該パリソン最内面同志が少なくとも一部において融着するように成型型にて成形して得られる、ポリプロピレン系樹脂発泡層の表面にポリプロピレン系樹脂層を有する発泡成形体であって、発泡成形体の上記発泡層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力： $MT \text{ (gf)}$  とメルトフローレイト： $MFR \text{ (g/10分)}$  とが下記（1）式の関係を満たすとともに、発泡成形体の上記樹脂層を形成しているポリプロピレ

ン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFRが0.3（g／10分）以上の場合には、該樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／10分）とが、下記（2）式の関係を満たし、発泡成形体の上記樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFRが0.2（g／10分）以上、0.3（g／10分）未満の場合には、該樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MTが10（gf）以上であることを特徴とする。

【0008】

【数7】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.66 \quad \dots (1)$$

【0009】

【数8】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.47 \quad \dots (2)$$

【0010】

本発明の多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体は、発泡成形体の発泡層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／10分）とが下記（3）式の関係を満たすとともに、発泡成形体の樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFRが0.5（g／10分）以上の場合には、該樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／10分）とが、下記（4）式の関係を満たし、発泡成形体の樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFRが0.2（g／10分）以上、0.5（g／10分）未満の場合には、該樹脂層を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MTが10（gf）以上であるものが好ましい。

【0011】

【数9】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.79 \quad \dots (3)$$

【0 0 1 2】

【数 1 0】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.69 \quad \dots (4)$$

【0 0 1 3】

また本発明の発泡成形体は、ポリプロピレン系樹脂層の厚みが  $100 \mu m \sim 10 mm$  であり、発泡成形体全体の密度が  $20 \sim 400 kg/m^3$  であるものが好ましい。

【0 0 1 4】

本発明の多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体の製造方法は、溶融張力：MT (gf) とメルトフローレイト：MFR (g/10分) とが下記 (5) 式の間係を満足するポリプロピレン系樹脂に発泡剤を添加し溶融混練して得られる発泡性溶融樹脂と、メルトフローレイト：MFR が  $0.3 (g/10分)$  以上であって且つ溶融張力：MT (gf) とメルトフローレイト：MFR (g/10分) とが、下記 (6) 式の間係を満足するか、或いはメルトフローレイト：MFR が  $0.1 (g/10分)$  以上、 $0.3 (g/10分)$  未満であって且つ溶融張力：MT が  $10 (gf)$  以上のポリプロピレン系樹脂を溶融混練して得られる溶融樹脂とを共押出することにより、上記発泡性溶融樹脂が発泡してなる樹脂発泡層の少なくとも外面に、上記溶融樹脂よりなる樹脂層を有する多層バリソンを形成し、次いで該バリソン最内面同志が少なくとも一部において融着するように成形型にて成形してポリプロピレン系樹脂発泡層の表面にポリプロピレン系樹脂層を有する発泡成形体を得ることを特徴とする。

【0 0 1 5】

【数 1 1】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.66 \quad \dots (5)$$

【0 0 1 6】

【数 1 2】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.47 \quad \dots (6)$$

【0 0 1 7】

また本発明の容器は、上記多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体よりなる容器

であって、全体の密度が  $3.0 \sim 4.00 \text{ kg/m}^3$ 、ポリプロピレン系樹脂層の厚みが  $200 \mu\text{m} \sim 5 \text{ mm}$ であることを特徴とする。

【0018】

【発明の実施の形態】

以下、図面を用いて本発明を詳細に説明する。本発明における多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体（以下、発泡成形体と言うこともある）の具体例を図1に示す。図1（a）～（c）に示すように、本発明の発泡成形体1は、ポリプロピレン系樹脂発泡層12の表面がポリプロピレン系樹脂面層13で覆われた構成を有する。

【0019】

本発明の発泡成形体1は、多層パリソンを金型などの成形型に挟み込んで圧縮成形することで得られる。本発明において多層パリソンとは、吹き込み成形等で金型に挟んで空気を吹き込み可能に予備成形されたものと同じ又は類似の機能を発揮できる形状のものである。図2は多層パリソン6の一例を示し、図1（a）に示す発泡成形体1は、図2（a）に示す多層パリソン6より、図1（b）は、図2（b）に示す多層パリソン6より、図1（c）に示す発泡成形体1は、図2（c）に示す多層パリソン6より、それぞれ得られる。

【0020】

図2（a）の多層パリソン6は、ポリプロピレン系樹脂の樹脂発泡層2の外面に、ポリプロピレン系樹脂の樹脂層3が積層された構成を有し、図2（b）に示す多層パリソン6は、図2（a）に示す多層パリソン6の樹脂層3の表面に更に重合体層4が積層された構成を有し、更に図2（c）に示す多層パリソン6は、図2（a）に示す多層パリソン6の内面にも樹脂層3が積層された構成を有している。

【0021】

上記樹脂層3としては、非発泡体あるいは密度  $0.4 \text{ g/cm}^3$ 以上の発泡体又は無機物充填非発泡体が好ましく用いられる。上記多層パリソン6は、樹脂発泡層2を構成するポリプロピレン系樹脂に発泡剤を添加して押出機内で溶融混練して調製した発泡性溶融樹脂と、樹脂層3を構成するポリプロピレン系樹脂を別

の押出機内で溶融して調製した溶融樹脂（或いは更に重合体層 4 を構成する重合体を更に別の押出機内で溶融して調製した溶融重合体）とを、共押出用のダイス内にて合流積層させ、該ダイスから低圧域に共押出して発泡性樹脂を発泡させることにより得ることができる。

## 【0022】

本発明において発泡成形体 1 のポリプロピレン系樹脂層 1 3（以下、発泡成形体の樹脂層と言うことがある）は、図 1（a）、（c）に示すように基本的には発泡成形体 1 の表皮を形成し、多層パリソン 6 の樹脂層 3 に対応するものである。一方、発泡成形体 1 のポリプロピレン系樹脂発泡層 1 2（以下、発泡成形体の発泡層と言うことがある）は、多層パリソン 6 の発泡層 2 に対応するものである。また、図 2（b）に示す多層パリソンにおける重合体層 4 は、図 1（b）に示す発泡成形体の樹脂層 1 3 の外面に設けられた重合体層 1 4（以下、発泡成形体の重合体層と言うことがある）に相当する。

## 【0023】

更に、図 2（c）に示した多層パリソン 6 のように、内面側にもポリプロピレン系の樹脂層 3 を形成した多層パリソンを用いて成形することにより、図 1（c）に示すように、ポリプロピレン系樹脂発泡層 1 2 に挟まれたポリプロピレン系樹脂の芯層 1 5 を有する発泡成形体 1 が得られる。この発泡成形体 1 における芯層 1 5 は、多層パリソン 6 の内面側の樹脂層 3 において内面同士が融着したものに相当する。

## 【0024】

上記発泡成形体の発泡層 1 2 を形成するために使用されるポリプロピレン系樹脂、つまり、多層パリソンの発泡層 2 を形成するために使用されるポリプロピレン系樹脂としては、ポリプロピレン系樹脂を主成分とし、230℃におけるメルトテンション：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／10分）とが下記（5）式の関係を満たすポリプロピレン系樹脂（以下、「特定ポリプロピレン系樹脂 A」という）が使用される。

## 【0025】

## 【数 1 3】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.66 \quad \dots (5)$$

【0026】

上記(5)式を満足しないポリプロピレン系樹脂から樹脂発泡層2を得ようとしても高発泡倍率、高厚みの発泡層を得ることができない。また、特定ポリプロピレン系樹脂AのMT(gf)とMFR(g/10分)との関係において好ましい範囲は下記(7)式のものであり、更に高発泡倍率、高厚みの発泡層を得ることができる。

【0027】

【数14】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 1.14 \quad \dots (7)$$

【0028】

また、上記特定ポリプロピレン系樹脂AのMFRは0.3~20g/10分であることが好ましい。MFRが0.3g/10分未満の場合、特定ポリプロピレン系樹脂Aと発泡剤とを溶融混練して得られる発泡性溶融樹脂の押出發泡温度を高くしなければならず、樹脂の粘弾性が低下してしまい該樹脂から発泡剤が飛散し、独立気泡構造の発泡層を得られない虞がある。一方、MFRが20g/10分を超えると、得られた多層バリソンの樹脂発泡層は、加熱成形時の流動性が高いためにドロダウンが大きくなってしまい、大型の発泡成形体を得る際に装置上の工夫が必要となる。

【0029】

上記発泡成形体の樹脂層13を形成するために用いるポリプロピレン系樹脂、つまり、多層バリソン6の樹脂層3を形成するために使用されるポリプロピレン系樹脂としてはポリプロピレン系樹脂を主成分とし、MFRが0.3(g/10分)以上の場合には、MT(gf)とMFR(g/10分)とが、下記(6)式の関係満足し、MFRが0.2(g/10分)以上、0.3(g/10分)未満の場合にはMTが10(gf)以上であるポリプロピレン系樹脂(以下、「特定ポリプロピレン系樹脂B」という)が使用される。

【0030】

【数15】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.47 \quad \dots (6)$$

【0 0 3 1】

MFRが0.3 (g/10分)以上で上記(6)式を満足しないポリプロピレン系樹脂や、MFRが0.2 (g/10分)以上、0.3 (g/10分)未満でMTが10 (gf)未満のポリプロピレン系樹脂を溶融混練し多層パリソンの樹脂層3を形成した場合、該パリソンを成形機にて成形すると樹脂層3が樹脂発泡層2の伸びに追従しきれず、樹脂層3の伸びむらが起こり、樹脂層表面に鱗状の模様、亀裂や穴が発生し、発泡成形体1の樹脂層13が良好なものとならない。

また、MFRが0.2 (g/10分)未満のものから多層パリソン6の樹脂層3を形成ようとする、流動性が低いことよりダイスでの押出温度を高くしなければならないが、一方で該樹脂層3が積層される樹脂発泡層2は発泡に適正な粘度になるまでダイスでの押出發泡温度を下げる必要性があるため、両者を共押出すること自体が難しくなり、樹脂層3の熱により樹脂発泡層2の気泡構造が破壊されることになる。また特定ポリプロピレン系樹脂BのMTが10 (gf)以上の場合には、MFRが少なくとも0.2 (g/10分)以上であれば、特定ポリプロピレン系樹脂Bの流動性の悪さを溶融時の張力の強さによって補うことができるため、多層パリソンの製造条件、該パリソンの成形条件等を充分考慮することにより発泡成形体の樹脂層13に鱗状の模様、亀裂や穴等を発生させることなく良好な発泡成形体1を得ることができる。なお、特定ポリプロピレン系樹脂BのMFRは、得られる多層パリソン6のドローダウン防止のために20 (g/10分)以下であることが好ましい。また、特定ポリプロピレン系樹脂Bとしてより好ましいものは、MFRが0.5 (g/10分)以上であって、MT (gf)とMFR (g/10分)とが下記(8)式の関係満足するか、MFRが0.2 (g/10分)以上、0.5 (g/10分)未満であってMTが10 (gf)以上のものであり、更に好ましくはMFRが0.8 (g/10分)以上で且つMT (gf)とMFR (g/10分)とが下記(9)式の関係満足するか、MFRが0.2 (g/10分)以上、0.8 (g/10分)未満であってMTが10 (gf)以上のものである。このような樹脂Bを用いると発泡成形体1の樹脂層13の厚みが更に均一で良好なものとなる。

【0 0 3 2】

【数 1 6】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.69 \quad \dots (8)$$

【0 0 3 3】

【数 1 7】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.90 \quad \dots (9)$$

【0 0 3 4】

上記特定ポリプロピレン系樹脂 A 及び B は例えば、次のような方法によって得ることができる。即ち、MT が小さい通常のポリプロピレン系樹脂（以下、特定ポリプロピレン系樹脂と区別するために、特定ポリプロピレン系樹脂 A、B を得るために用いる通常のポリプロピレン系樹脂を「原料ポリプロピレン系樹脂」という）と、1 分間半減期温度が原料ポリプロピレン系樹脂の融点よりも低い過酸化化物（1 分間半減期温度とは、過酸化化物の半減期が 1 分間となる温度）と、主鎖切断防止剤とを水性媒体中に投入してこれらを攪拌し、過酸化化物が分解してしまうのを極力抑え、少なくとも投入した過酸化化物の全量の半分以上が残存するような温度と時間で、原料ポリプロピレン系樹脂に過酸化化物と主鎖切断防止剤を含浸させ、次いで、使用した過酸化化物の 1 分間半減期温度となる温度条件下で所定時間保持して過酸化化物を分解せしめ、原料ポリプロピレン系樹脂を溶融させることなくゲル分率が 1 % 未満となるように、原料ポリプロピレン系樹脂を微架橋させる方法、また、アタクチック成分及び／又はアイソタクチックでありながら結晶していない成分を含む原料ポリプロピレン系樹脂に対し、低温分解型（分解温度：室温～120℃程度）の過酸化化物を混合して 120℃以下で加熱し、原料ポリプロピレン系樹脂の主鎖にアタクチック成分及び／又は結晶していないアイソタクチック成分を分岐鎖として結合させ長鎖分岐を有するポリプロピレン系樹脂とする方法により得ることができる。

【0 0 3 5】

上記方法において、原料ポリプロピレン系樹脂としては、プロピレンホモポリマーやプロピレンと他のモノマー成分との共重合体を用いることができる。他のモノマー成分としては、エチレン、1-ブテン、イソブチレン、1-ペンテン、



3-メチル-1-ブテン、1-ヘキセン、3,4-ジメチル-1-ブテン、1-ヘプテン、3-メチル-1-ヘキセン等が挙げられる。共重合体は、ランダム共重合体でもブロック共重合体でも良い。

【0036】

原料ポリプロピレン系樹脂として共重合体を用いる場合、ポリプロピレン系樹脂本来の特性が損なわれないように、他のモノマー成分は共重合体中に、ランダム共重合体の場合には5.0重量%以下、ブロック共重合体の場合には20.0重量%以下の割合で含有されているのが好ましい。

【0037】

また、上記したような原料ポリプロピレン系樹脂は、単独で用いるのみならず、2種以上を混合して用いても良い。更に、原料ポリプロピレン系樹脂には、ポリプロピレン本来の特性が損なわれない範囲で、高密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、直鎖状超低密度ポリエチレン、エチレン-ブテン共重合体、エチレン-無水マレイン酸共重合体等のエチレン系樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体、スチレン系樹脂等の他の樹脂成分を必要に応じて混合しても良い。

【0038】

上記方法において原料ポリプロピレン系樹脂から特定ポリプロピレン系樹脂A、Bを調整するために使用される過酸化物としては、例えば、ラウロイルパーオキサイド、m-トルオイル-ベンゾイルパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイド、ビス(4-ブチルシクロヘキシル)パーオキシジカーボネート等が挙げられ、これらのなかから1分間半減期温度が使用する原料ポリプロピレン系樹脂の融点未満のものが選択される。また、主鎖切断防止剤は、過酸化物によって原料ポリプロピレン系樹脂の主鎖が切断されるのを防止するためのものであり、例えば、メチルメタクリレート、ジビニルベンゼン、トリアリルシアヌレート等が用いられ、水性媒体としては、通常は界面活性剤を添加した水が用いられる。

【0039】

MTとMFRとの間に、上記(5)式で示す関係を有する特定ポリプロピレン系樹脂Aは、上記方法において得られる分岐鎖を有するポリプロピレン系樹脂の

分岐鎖の長さ、主鎖に対する分岐点の割合を調整ことにより得ることができ、特に分岐鎖の長さを長くし分岐点の割合を比較的少なくすることにより（７）式の関係性を有する特定ポリプロピレン系樹脂 A が得られる。また M T と M F R との間に、上記（６）式で示す関係性を有する特定ポリプロピレン系樹脂 B も、上記特定ポリプロピレン系樹脂 A と同様にして調製することができ、また直鎖構造のポリプロピレン系樹脂であっても高分子量のものを滑剤等で流動性を改善することにより得ることができ、特に分岐鎖を有するポリプロピレン系樹脂を選択し、調製することにより（８）、（９）式の関係性を有する特定ポリプロピレン系樹脂 B が得られる。

## 【 0 0 4 0 】

但し、上記方法等は特定ポリプロピレン系樹脂 A、B を得るための一例であり、本発明において発泡成形体の発泡層 1 2 や発泡成形体の樹脂層 1 3 を形成するための基材樹脂に用いられるポリプロピレン系樹脂 A、B は、上記方法で得られたものであるに限らず、前記した式を満足するメルテンション（M T）とメルトフローレイト（M F R）の関係を満足するものであればその入手方法は特に問わない。また、上記特定ポリプロピレン系樹脂 A、B という表記は、発泡成形体 1 の発泡層 1 2 を形成するために用いる上記した要件をみたすような基材樹脂と、発泡成形体の樹脂層 1 3 を形成するために用いる上記した要件を満たすような基材樹脂とを便宜的に区別するためのものであって、発泡成形体の発泡層 1 2 を形成するために用いる基材樹脂に要求される上記した要件と、発泡成形体の樹脂層 1 3 を形成するために用いる基材樹脂に要求される上記した要件とをともに満たしているポリプロピレン系樹脂であれば、発泡成形体の発泡層 1 2 と樹脂層 1 3 とともに同一の基材樹脂を用いて形成することもできる。また使用後の本発明の発泡成形体、発泡成形体製造時に発生するスクラップやバリを溶融等してリサイクル原料として使用する場合、上記特定ポリプロピレン A 又は B の条件を満足するものであれば、何回でもリサイクル原料として使用することができる。

## 【 0 0 4 1 】

更に本発明で用いる特定ポリプロピレン系樹脂 A、B は、各々他の重合体成分を必要に応じて適宜混合したものも包含される。他の重合体成分を混合して特定

ポリプロピレン A、B を得る場合、当然のことながら混合系の特定ポリプロピレン系樹脂 A、B の MT と MFR が、前記 MT と MFR との関係を満足するものでなければならない。他の重合体成分を混合して調製した混合系の特定ポリプロピレン系樹脂 A、B における他の重合体成分としては、特定ポリプロピレン系樹脂 A、B を得るための一例として挙げた前述の方法において、原料ポリプロピレン系樹脂に混合できる他の樹脂成分として例示したのと同様の樹脂や、エチレンープロピレンラバー等のゴム、スチレンーブタジエーンスチレンブロック共重合体やスチレンーイソプレーンスチレンブロック共重合体、或いはこれらの水素添加物等のポリスチレン系エラストマーや、更には、プロピレンーエチレンブロック共重合体等のポリオレフィン系共重合体をハードセグメントとし、エチレンープロピレンランダム共重合体、エチレンープロピレンージエンランダム共重合体等のポリオレフィン系共重合体ゴムをソフトセグメントとするポリオレフィン系エラストマー等を用いることができる。尚、特定ポリプロピレン系樹脂 A 又は B の中の、ポリプロピレン系樹脂以外の重合体成分の割合が多くなると、たとえ上記した MT と MFR との関係を満足していても、ポリプロピレン系樹脂本来の特性が損なわれてしまう虞れがある。このため、特定ポリプロピレン系樹脂 A、B を得るにあたって原料ポリプロピレン系樹脂に他の重合体成分を混合する場合や、更にはポリプロピレン系樹脂に他の重合体成分を混合して特定ポリプロピレン系樹脂 A、B を調製する場合には 65 重量%以上、好ましくは 80 重量%以上の割合でポリプロピレン系樹脂成分が特定ポリプロピレン系樹脂 A、B 中に含まれるようにする。

#### 【0042】

ここで、本明細書における溶融張力 (MT) は、株式会社東洋精機製作所製のメルトテンションテスター II 型等によって測定することができる。具体的には、ノズル径 2.095 mm、長さ 8 mm のノズルを有するメルトテンションテスターを用い、上記ノズルから樹脂温度 230℃、押出のピストン速度 10 mm/分の条件で樹脂を紐状に押し出して、この紐状物を直径 4.5 mm の張力検出用プーリーに掛けた後、5 rpm/秒 (紐状物の捲取り加速度:  $1.3 \times 10^{-2} \text{ m/秒}^2$ ) 程度の割合で捲取り速度を徐々に増加させていきながら直径 50 mm の捲取

りローラーで捲取る。そして、まず、張力検出用プーリーに掛けた紐状物が切れるまで捲取り速度を増加させ、紐状物が切れたときの捲取り速度を $R$  (rpm) を求める。次いで $R \times 0.7$  (rpm) の一定の捲取り速度において、捲取りを行って張力検出用プーリーと連結する検出機により検出される紐状物の溶融張力 (MT) を経時的に測定し、縦軸に MT (gf) を、横軸に時間 (秒) を取ったチャートに示すと、図 3 のように振幅をもったグラフが得られる。図 3 において、本発明における MT は、振幅の安定した部分の振幅の中央値 (X) とする。但し、捲取り速度が 500 (rpm) に達しても紐状物が切れない場合には、捲取り速度 500 (rpm) において捲取りを行って得られるグラフから上記の通り測定される値を溶融張力 (MT) とする。尚、まれに発生する特異的な振幅は無視するものとする。また、メルトフローレイト (MFR) は、JIS K 7210 に記載されている 230℃、荷重 2.16 kgf で測定した値を採用するものとする。

#### 【0043】

発泡成形体の樹脂層 13 の外面に更に発泡成形体の重合体層 14 を有する発泡成形体 1 の場合、該重合体層 14 を構成するために用いられる重合体としては例えば、低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン等のポリエチレン系樹脂、ポリプロピレン、プロピレン-エチレンランダム共重合体、プロピレン-1ブテンランダム共重合体、プロピレン-エチレンブロック共重合体、プロピレン-1ブテンブロック共重合体等のポリプロピレン系樹脂、環状ポリオレフィン、ポリカーボネート系樹脂、ポリエステル系樹脂、スチレン系エラストマー、オレフィン系エラストマー、ポリエステル系エラストマー等から選択される一種又は二種以上の混合物等の熱可塑性重合体が挙げられる。尚、これらのうちで、発泡成形体の樹脂層 13 を構成する樹脂と実用的に十分な熱接着性を有さない熱可塑性重合体を用いる場合には、該重合体層 14 の樹脂層 13 との積層面側に接着層を設けると良い。尚、発泡成形体の重合体層 14 として、ポリオレフィン系エラストマー、ポリスチレン系エラストマー、耐衝撃性ポリスチレンを用いるのが、得られる成形体の耐衝撃性の面で好ましく、特にポリプロピレン系エラストマーを用いるのが耐熱性、耐衝撃性の面で好ましい。また、発泡

成形体の重合体層 1 4 はフィルム状又はシート状に限らず、不織布、織布等の繊維状の形態のものであってもよく、また重合体層 1 4 は単層のものに限らず多層のものであっても良い。

【 0 0 4 4 】

また、発泡成形体の発泡層 1 2、樹脂層 1 3 及び重合体層 1 4 には、赤外線吸収剤、赤外線反射剤、難燃剤、流動性向上剤、耐候剤、着色剤、熱安定剤、酸化防止剤、結晶核剤、無機充填剤、ゴム等の各種添加剤を必要に応じて適宜配合することができる。

【 0 0 4 5 】

本発明の発泡成形体 1 の樹脂層 1 3 の厚みは  $100\mu\text{m} \sim 10\text{mm}$  が好ましく、更に好ましくは  $100\mu\text{m} \sim 7\text{mm}$  である。樹脂層 1 3 の厚みが薄くなりすぎると表面平滑性が低下するため、該成形体 1 の表面外観が劣る虞れがある。また該樹脂層 1 3 の厚みが厚くなりすぎると、発泡成形体 1 全体の重量も重くなることから、用途によっては、軽量とは言い難くなり、また、発泡成形体の発泡層 1 2 の独立気泡率が低くなることがある。

【 0 0 4 6 】

多層パリソン 6 から発泡成形体 1 を製造する際、該パリソンの成形条件を適宜選択することによって多層パリソン 6 の内面層同志が融着した部分に比較的高密度の芯層 1 5 を存在させることで該芯層 1 5 がリブの如き働きをして、成形品 1 に収縮や変形が発生するのを防止する効果が期待できる。芯層 1 5 の厚みは  $0.1 \sim 10\text{mm}$  が好ましく、芯層 1 5 の厚みが  $0.1\text{mm}$  未満になると、上記のリブの如き働きが低下し、成形品 1 に収縮や変形が発生しやすくなる虞れがある。特に厚みの厚い芯層 1 5 を有する発泡成形体 1 は、図 2 (b) に示す多層パリソン 6 を成形することによって得られ、多層パリソン 6 における内面側のポリプロピレン系樹脂層 3 によって芯層 1 5 が構成される。

【 0 0 4 7 】

本発明の発泡成形体 1 を成形するために用いられる前記多層パリソン 6 の樹脂発泡層 2 を形成するために、前記特定ポリプロピレン系樹脂 A と発泡剤、更に適宜タルク等の気泡調整剤等とを押出機にて熔融混練することにより発泡性熔融樹

脂を調製する。また、ポリプロピレン系樹脂からなる樹脂層 3 を形成するために、前記特定ポリプロピレン系樹脂 B、更に必要に応じて各種添加剤を加えて押出機にて溶融混練することにより溶融樹脂を調製する。そして、上記発泡性溶融樹脂と溶融樹脂とを共押出用の環状ダイス内にて合流積層させ、該環状ダイスから低圧域に共押出しすることにより、発泡性溶融樹脂を発泡させて多層パリソン 6 を得ることができる。尚、図 1 (c) に示すように発泡成形体の樹脂層 1 3 の外面に更に重合体層 1 4 を有する発泡成形体 1 を得るために用いる多層パリソンや、3 層以上の層構成の多層パリソンは、層の数に応じた台数の押出機を使用するとともに、共押出用の環状ダイスも多層パリソンの層の数に応じた複数の樹脂を合流積層することのできる構造のものをを用いることにより得ることができる。

## 【0048】

発泡成形体の発泡層 1 2 を形成するために特定ポリプロピレン系樹脂 A に添加される発泡剤としては、揮発性発泡剤、分解型発泡剤のいずれも使用可能であるが、発泡倍率の高い発泡層を得るには揮発性発泡剤を使用することが好ましい。揮発性発泡剤としては例えば、プロパン、ノルマルブタン、イソブタン、ノルマルペンタン、イソペンタン、ノルマルヘキサン、イソヘキサン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素、塩化メチル、塩化エチル等の塩化炭化水素、1,1,1,2-テトラフロロエタン、1,1-ジフロロエタン等のフッ化炭化水素等が挙げられる。分解型発泡剤としては、アゾジカルボンアミド等が挙げられる。上記した発泡剤は、2 種以上混合して使用可能であり、又、気泡の調整も兼ねて分解型発泡剤を無機発泡剤や揮発性発泡剤に併用することも可能である。

## 【0049】

次に、図 4 及び図 5 により本発明発泡成形体 1 の製造方法を更に詳しく説明する。図 4 に示すように例えば、パリソンを形成するに際して各層を形成する基材樹脂をそれぞれ別々の押出機内（図示しない）で溶融混練し、これらをダイス 2 1 内で合流積層させながら、押出機内より低圧域に押出すことで多層パリソン 6 を得ることができる。必要に応じて押出機とダイス 2 1 の間もしくはダイス 2 1 内にアキュムレーターを設置してもよい。

## 【0050】

多層パリソン 6 から発泡成形体 1 を得るには、多層パリソン 6 を形成後、図 4 に示すように、押出された多層パリソン 6 の両側面から挟むように分割形式の雄型 2 2 a と雌型 2 2 b とを閉鎖していく。金型を閉鎖していくとキャビティ内では多層パリソン 6 が圧縮されて、扁平状に変形しながら、多層パリソン 6 が金型内面に密着される。次いで図 5 に示すように、金型の閉鎖を完了することにより、多層パリソン 6 の最内面同志の少なくとも一部が接合一体化され、本発明の発泡成形体 1 が得られる。尚、図 1 に示すように、多層パリソン 6 の最内面同志を完全に密着させて隙間なく一体化させた発泡成形体 1 は、機械的強度、寸法安定性に優れるため好ましい。

## 【0051】

また、図 4 に示すように金型に減圧用配管 2 3 を設け金型内面とパリソン外表面との間が減圧可能に形成された金型を用い、減圧しながら成形することにより、多層パリソンの最外表面と金型の内面とがよく密着し、金型形状を良好に再現した発泡成形体 1 が得られるとともに、得られた発泡成形体 1 は外観も良好なものとなり、金型内面に模様を有する金型を使用した場合、発泡成形体への模様転写性が良好となり、更に外観に優れたものとなる。

## 【0052】

また多層パリソン 6 を押出した直後、パリソンピンチにより該パリソン 6 の開口端を閉鎖し、プリブローを行って膨張させた多層パリソン 6 を上記と同様にして成形してもよい。

## 【0053】

尚、図 4、図 5 は発泡成形体の製造例を概念的に示す説明図であり、本発明において発泡成形体を製造する具体的な操作手順は図示するものに限定されない。また、多層パリソンを深絞り成形する場合には図 6 (a)、(b) に示すように、雌型 2 2 b を、底面部 2 4 を中心に、四方の側面部 2 5 の可動によって雌型 2 2 b の型組み、展開が可能に構成し、雌型 2 2 b を展開した状態から、雄型 2 2 a と雌型 2 2 b を閉鎖しながら雌型 2 2 b の側面部 2 5 を動かして雌型 2 2 b を型組して成形するようにすることが好ましい。

## 【0054】

上記多層パリソン 6 の最内面同志の融着割合は、本明細書においては融着部面積比 (%) で表すものとし、本発明においては融着部面積比が 6 0 % 以上、更には 8 0 % 以上、特に 9 5 % 以上のものが発泡成形体 1 の十分な機械的強度、寸法安定性を達成する上で好ましい。融着部面積比の測定方法は以下の通りである。

【 0 0 5 5 】

発泡成形体 1 を等間隔で 1 0 等分するように発泡成形体製造時の多層パリソン押出方向に直交し、且つ多層パリソン金型圧縮方向に平行な方向で切断する。次に切断した発泡成形体切断片は、発泡成形体を形成していた順番通りに切断面が左右方向に位置するように置き、各成形体切断片における右側の切断面において多層パリソン最内面同志が融着している部分の長さ (mm) を求め、これを 2 倍した値を融着部長さ L (mm) とする。更に該右側の切断面において、多層パリソンの最内面同志が融着していないで空隙部を形成している場合、空隙部の内周長さ M (mm) を求める。尚、各切断面において前記融着部及び／又は空隙部が複数存在する場合は各々の箇所について、各部分の融着部長さ又は各部分の空隙部の内周長さを求め、各々の合計を L 又は M とする。そしてこれらの値から下記式により融着部面積比 (%) を求める。

【 0 0 5 6 】

【数 1 8】

$$\text{融着部面積比 (\%)} = [L / (L + M)] \times 100$$

【 0 0 5 7 】

尚、空隙部がない状態で該最内面同志が隙間なく融着している断面は当然該面積比は 1 0 0 % となる。そして各切断面 (但し、最内面融着部自体が存在しない切断面は除く) の融着部面積比の算術平均値をもって発泡成形体の融着部面積比 (%) とする。

【 0 0 5 8 】

上記製造例で示したように本発明の発泡成形体 1 は、発泡成形体の発泡層 1 2 を形成するために特定ポリプロピレン系樹脂 A を、発泡成形体の樹脂層 1 3 を形成するために特定ポリプロピレン系樹脂 B を原料として使用するものであるが、それらの樹脂から最終的に成形された発泡成形体 1 の発泡層 1 2 及び樹脂層 1 3



から切り出した試料に基づき（発泡層においては、200℃の真空オーブン中に15分程度入れて加熱溶融させることにより脱泡させた後）、前述の通り特定ポリプロピレン系樹脂A、BのMTと、MFRの測定と同じ方法にてMTと、MFRを測定すると、発泡成形体1を得るまでの熱履歴等の違いにより発泡成形体の発泡層12や樹脂層13から求めたMT、MFRの値は、元の特定ポリプロピレン系樹脂A、BのMT、MFRの値と異なることがあり、また同じ特定ポリプロピレン系樹脂を用いて得た発泡成形体であっても、多層パリソンを製造する際の押出条件等の違いにより、得られた発泡成形体の発泡層12や樹脂層13から求められるMT、MFRの値は相互に異なることがある。

## 【0059】

そこで、発泡成形体1の発泡層12及び樹脂層13から切り出したサンプルから上記の通りMTと、MFRとを測定したとき、発泡成形体の発泡層12を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g/10分）とが下記（1）式の関係を満たすとともに、発泡成形体の樹脂層13を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFRが0.3（g/10分）以上であって、該樹脂層を構成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g/10分）とが下記（2）式の関係を満たすか、発泡成形体の樹脂層13を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFRが0.2（g/10分）以上、0.3（g/10分）未満であって、該樹脂層を構成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MTが10（gf）以上であるものが所期の目的を達成する良好な発泡成形体である。

## 【0060】

## 【数19】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.66 \quad \dots (1)$$

## 【0061】

## 【数20】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.47 \quad \dots (2)$$

## 【0062】

更に、発泡成形体の発泡層 1 2 を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT (gf) とメルトフローレイト：MFR (g/10分) とが下記 (3) 式の関係を満たすとともに、発泡成形体の樹脂層 1 3 を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される MFR が 0.5 (g/10分) 以上であって、該樹脂層 1 3 を構成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT (gf) とメルトフローレイト：MFR (g/10分) とが下記 (4) 式の関係を満たすか、発泡成形体の樹脂層 1 3 を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定されるメルトフローレイト：MFR が 0.2 (g/10分) 以上、0.5 (g/10分) 未満であって、該樹脂層を構成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT が 10 (gf) 以上であるものが特に好ましく、大型の発泡成形体や深絞りの発泡成形体、或いは大型且つ深絞りの発泡成形体であっても、外観、機械的物性において優れたものとなる。

## 【0063】

## 【数 2 1】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.79 \quad \dots (3)$$

## 【0064】

## 【数 2 2】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.69 \quad \dots (4)$$

## 【0065】

本発明ではポリプロピレン系樹脂からなる樹脂発泡層 2 の少なくとも外面にポリプロピレン系樹脂からなる樹脂層 3 を有する多層パリソン 6 を、成型型にて成形することにより発泡成形体を得ている。このように多層パリソン 6 を使用して、本発明成形体 1 を得ることにより、発泡成形体 1 の発泡層 1 2 と樹脂層 1 3 との接着性が、より強固なものとなり、また、発泡成形体 1 の樹脂層 1 3 の厚みはより均一なものとなり、該発泡層 1 2 の発泡倍率のより高いものを容易に得られ、外観良好な多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体 1 となる等の優位性がある。

## 【0066】

本発明の発泡成形体 1 の発泡層 1 2 の密度は  $20 \sim 500 \text{ kg/m}^3$  が好まし

く、さらに好ましくは  $25 \sim 400 \text{ kg/m}^3$  である。該発泡層 12 の密度が  $500 \text{ kg/m}^3$  を超えると軽量とは言い難くなり、また断熱性等の物性が低下するおそれがある。また該発泡層 12 の密度が  $20 \text{ kg/m}^3$  未満としようとすると、発泡層を構成している気泡膜が薄くなり成形時に破泡し易くなる等、成形が困難になり、良好な発泡成形体 1 とはならない虞れがある。

【0067】

尚、発泡成形体の発泡層 12 の密度は次のようにして求める。発泡成形体 1 より該発泡層 12 のみを切り出し、切り出したサンプルの重量 (g) を、その外形寸法より求められる体積 ( $\text{cm}^3$ ) にて割り、 $\text{kg/m}^3$  単位に換算することにより求められる。また各層の厚みは、成形体断面（必要に応じて顕微鏡により拡大し、拡大された投影図を用いる）より求めることができる。尚、発泡成形体の部分部分により発泡層の密度が異なる場合があるため、発泡成形体の底面、側面等の 10 箇所以上から発泡成形体の発泡層 12 のサンプルを切り出し、各々のサンプルについて密度を測定し、最大値及び最小値を除いた値の算術平均をもって発泡成形体の発泡層 12 の密度とする。

【0068】

本発明の発泡成形体 1 において、発泡成形体の樹脂層 13 の厚みは  $100 \mu\text{m} \sim 10 \text{ mm}$  が好ましい。該樹脂層 13 の厚みが薄くなりすぎると、発泡成形体 1 の表面平滑性が低下するため外観が悪くなる虞れがある。一方、発泡成形体の樹脂層 13 の厚みが厚くなりすぎると発泡成形体 1 の重量が重くなってしまい、用途によっては軽量とは言い難くなる。

【0069】

また、本発明の発泡成形体 1 全体の密度は、おおむね  $20 \sim 800 \text{ kg/m}^3$  であり、好ましくは  $20 \sim 400 \text{ kg/m}^3$  である。該成形体 1 の全体の密度が  $800 \text{ kg/m}^3$  を超えると軽量性や断熱性が低下する虞れがある。また、該成形体 1 の密度が  $20 \text{ kg/m}^3$  未満の場合は圧縮強度等の機械的物性が低下する虞れがある。

【0070】

尚、発泡成形体 1 の全体の密度は、発泡成形体 1 の重量 (kg) を、該成形体

1 を水没して測定した体積 ( $\text{m}^3$ ) (但し、発泡成形体内部に空隙部が存在する場合であっても求められる該成形体の体積より空隙部の容積を差し引くことはしない) で除することにより求められる値である。

【0071】

本発明において、発泡成形体からなる容器の具体例として、図1に容器の断面形状を示した。図1に示す発泡成形体1は、多層パリソンの最内面同志を隙間なく完全に融着させた構成であり、容器空間16が形成されるように成形したものである。

【0072】

上記のような容器は、密度が  $30 \sim 400 \text{ kg/m}^3$  であることにより軽量で、断熱性に優れたものとなり、また表面層13の厚みが  $200 \mu\text{m} \sim 5 \text{ mm}$  であることにより、耐久性、表面平滑性が高く、外観と軽量性のバランスのとれたものとなり、容器に成型後の収縮が小さく、外力に対する機械的強度に優れたものとなる。また耐熱性に優れるため蒸気滅菌を行うことができ、リターナブル容器として特に好適なものである。

【0073】

【実施例】

以下、実施例を挙げて本発明をより詳細に説明する。尚、以下の実施例、比較例において使用したポリプロピレン系樹脂のメルトテンション: MT (gf) 及びメルトフローレイト: MFR (g/10分) の値を表1に示す。

【0074】

【表 1】

	プロピレン系樹脂	MT (g f)	MFR (g / 10 分)
樹脂 A	モンテル カナダ CO 製 SD 6 3 2 (プロピレン系樹脂)	2 0	3
樹脂 B	モンテル カナダ CO 製 PF 8 1 4 (単独重合体)	2 2	3
樹脂 C	日本ポリオレフィン (株) 製 PM 6 2 0 A (プロピレン- エチレンランダム共重合体)	0. 4	8
樹脂 D	出光石油化学 (株) 製 J 7 0 0 G P (単独重合体)	0. 4	8
樹脂 E	チッソ (株) 製 SB 7 0 0 0 (プロピレン-エチレンブ ロック共重合体)	2 6	0. 1 2
樹脂 F	日本ポリケム (株) 製 EG 7 F (プロピレン-エチレン ランダム共重合体)	1. 6	2
樹脂 G	出光石油化学 (株) 製 E 1 5 0 G K (プロピレン-エチ レンブロック共重合体)	3. 9	0. 6
樹脂 H	樹脂 A / C = 5 0 / 5 0 (重 量比)	8	6
樹脂 I	樹脂 B / D = 5 0 / 5 0 (重 量比)	8	6

【0 0 7 5】

実施例 1

クエン酸ナトリウム 5 重量部及びタルク 1 0 重量部を低密度ポリエチレン樹脂 1 0 0 重量部に配合して調製した気泡調整剤マスターバッチ 3 重量部を、樹脂 A 1 0 0 重量部に対して配合し、これを口径 6 5 m m の押出機に供給し、更に揮発性発泡剤としてイソブタンを、樹脂 A 1 0 0 重量部に対して 2 重量部の割合で押出機内の樹脂中に圧入混練して発泡性溶融物とした。

## 【 0 0 7 6 】

一方、樹脂 A に着色剤を配合して、口径 4 0 m m の押出機に供給し、加熱溶融して非発泡性溶融物とした。次いで、各押出機内で溶融混練された溶融物を、各押出機と連結したアキュムレーターに各々充填した後、発泡性溶融物と非発泡性溶融物とがダイス内で同時に合流積層するように各アキュムレーターから発泡性溶融物と非発泡性溶融物を射出するとともに、ダイスから押出し、発泡性溶融物が発泡して形成された樹脂発泡層の外面に非発泡性溶融物からなる樹脂層が積層された多層パリソンを形成した。

## 【 0 0 7 7 】

次いで図 6 に示すように、押出された前記多層パリソンを挟むようにダイス直下に設置された箱形状の分割形式の金型を閉鎖していくことにより、金型内面にて多層パリソンを扁平状に変形させ、更に金型内を減圧して多層パリソンを金型内面に密着させて成形した後、冷却、離型して、開口部外形寸法 3 0 0 m m × 2 6 0 m m 、底面部外形寸法 2 6 0 m m × 1 8 0 m m 、高さ 1 1 0 m m 、容器肉厚約 2 0 m m の円すい台形状の容器状発泡成形体を得た。尚、上記金型には金型内面に梨地加工を施したものを使用した。この発泡成形体は表面平滑性が良く、収縮変形、座屈などの見られない外観良好なものであった。得られた発泡成形体の断面を観察したところ、発泡成形体の発泡層の表面に、多層パリソンの外表面の樹脂層からなる樹脂層を有し、また多層パリソンにおける樹脂発泡層の内面同士が隙間なく良好に融着してなる発泡成形体であった。

## 【 0 0 7 8 】

得られた発泡成形体の発泡層を形成している樹脂より測定される M F R 、 M T 、  $\log M T$  及び  $-0.74 \log M F R + 0.66$  の値を表 2 に、発泡成形体の樹脂層を形成している樹脂より測定される M F R 、 M T 、  $\log M T$  及び  $-1.02 \log$

MFR+0.47の値を表3に、また発泡成形体の樹脂層の厚み、発泡層の厚み、発泡層の密度、発泡成形体全体の密度を測定した結果を表4にそれぞれ示した。尚、表2、表3に示す数値において、かっこ内の数値は多層パリソンを製造するために用いた元の樹脂（基材樹脂）における値である。

【0079】

【表2】

	発泡成形体の発泡層を形成している樹脂				
	樹脂の種類	MFR (g/10分)	MT (gf)	log(MT) の値	-0.74log(MFR) +0.66の値
実施例1	樹脂A	4.5 (3)	6 (20)	0.78 (1.30)	0.18 (0.31)
実施例2	樹脂A	4.5 (3)	6 (20)	0.78 (1.30)	0.18 (0.31)
実施例3	樹脂A	4.5 (3)	6 (20)	0.78 (1.30)	0.18 (0.31)
実施例4	樹脂B	8.1 (3)	1.6 (22)	0.20 (1.34)	0.012 (0.31)
実施例5	樹脂B	8.1 (3)	1.6 (22)	0.20 (1.34)	0.012 (0.31)
実施例6	樹脂B	8.1 (3)	1.6 (22)	0.20 (1.34)	0.012 (0.31)
実施例7	樹脂B	8.1 (3)	1.6 (22)	0.20 (1.34)	0.012 (0.31)
実施例8	樹脂A	4.5 (3)	6 (20)	0.78 (1.30)	0.18 (0.31)
実施例9	樹脂A	4.5 (3)	6 (20)	0.78 (1.30)	0.18 (0.31)
比較例1	樹脂A	4.5 (3)	6 (20)	0.78 (1.30)	0.18 (0.31)
比較例2	樹脂C	8.5 (8)	0.4 (0.4)	-0.40 (-0.40)	0.028 (-0.008)
比較例3	樹脂F	2.6 (2)	1.5 (1.6)	0.18 (0.20)	0.35 (0.44)

【0080】

【表 3】

	発泡成形体の樹脂層を形成している樹脂				
	樹脂の種類 (混合比は重量比)	MFR (g/10分)	MT (g f)	log(MT) の値	-1.02log(MFR) +0.47 の値
実施例 1	樹脂 A	5. 6 (3)	5. 0 (20)	0. 70 (1. 30)	-0. 29 (-0. 017)
実施例 2	樹脂 C	8. 4 (8)	0. 4 (0. 4)	-0. 40 (-0. 40)	-0. 47 (-0. 45)
実施例 3	樹脂 H	7. 1 (6)	4. 1 (8)	0. 61 (0. 90)	-0. 40 (-0. 32)
実施例 4	樹脂 B	10. 1 (3)	0. 4 (22)	-0. 40 (1. 34)	-0. 55 (-0. 017)
実施例 5	樹脂 I	7. 1 (6)	3. 5 (8)	0. 54 (0. 90)	-0. 40 (-0. 32)
実施例 6	樹脂 D	6. 4 (8)	6. 0 (0. 4)	0. 78 (-0. 40)	-0. 35 (-0. 45)
実施例 7	樹脂 E	0. 3 (0. 12 )	16. 4 (26)	1. 21 (1. 41)	1. 00 (1. 40)
実施例 8	樹脂 F	2. 8 (2)	1. 6 (1. 6)	0. 20 (0. 20)	-0. 013 (0. 16)
実施例 9	樹脂 H	7. 1 (6)	4. 1 (8)	0. 61 (0. 90)	-0. 40 (-0. 32)
比較例 1	樹脂 G	0. 9 (0. 6)	2. 8 (3. 9)	0. 45 (0. 59)	0. 52 (0. 70)
比較例 2	樹脂 H	7. 1 (6)	4. 1 (8)	0. 61 (0. 90)	-0. 40 (-0. 32)
比較例 3	樹脂 H	7. 1 (6)	4. 1 (8)	0. 61 (0. 90)	-0. 40 (-0. 32)

【0081】



【表 4】

	発泡成形体						
	樹脂層厚み (mm)		発泡層厚み (mm)		発 泡 層 の密度 (kg/m <sup>3</sup> )	発 泡 成 形 体 全 体 の 密 度 (kg/m <sup>3</sup> )	外 観
	底面	側面	底面	側面			
実施例 1	1. 2	0. 9	1 6	1 6	1 5 0	2 5 0	◎
実施例 2	1. 1	0. 9	1 6	1 6	1 5 0	2 4 0	◎
実施例 3	1. 2	0. 9	1 6	1 6	1 5 0	2 5 0	◎
実施例 4	1. 2	0. 9	1 6	1 6	1 3 0	2 3 0	○
実施例 5	1. 1	0. 9	1 6	1 6	1 3 0	2 2 0	◎
実施例 6	1. 1	0. 9	1 6	1 6	1 3 0	2 2 0	◎
実施例 7	1. 2	0. 9	1 6	1 6	1 7 0	2 7 0	○
実施例 8	1. 2	0. 9	1 6	1 6	1 5 0	2 6 0	△
実施例 9	0. 9	0. 8	1 9	1 4	1 5 0	2 4 0	◎
比較例 1	1. 2	0. 9	1 6	1 6	1 5 0	2 6 0	※ 1
比較例 2	※ 2	※ 2	※ 2	※ 2	※ 2	※ 2	※ 2
比較例 3	※ 2	※ 2	※ 2	※ 2	※ 2	※ 2	※ 2

※ 1 : 発泡成形体の樹脂層がところどころで破れ、発泡体層が見える。

※ 2 : 発泡成形体が得られなかったため、測定せず。

【 0 0 8 2 】

尚、表 4 における外観の評価は、容器状発泡成形体を目視観察して以下の基準で判断した。

◎ : 鱗状の模様、亀裂や穴がなく、表面平滑性、金型再現性に優れる。

○ : 鱗状の模様、亀裂や穴がない。

△ : 亀裂や穴はないが、容器状発泡成形体側壁の一部に樹脂溶融流れの跡が僅

かに見られる。

【0083】

実施例 2 ～ 6、8、9

表 2 に示す発泡成形体の発泡層形成用樹脂及び、表 3 に示す発泡成形体の樹脂層形成用樹脂を用い、実施例 1 と同様にして多層パリソンを得、それを成形して発泡成形体を得た。得られた発泡成形体は実施例 1 と同様の良好な外観を有していた。また、この発泡成形体は、多層パリソンにおける樹脂発泡層の内面同士が隙間なく良好に融着している発泡成形体であった。得られた発泡成形体の諸物性を表 2 ～ 表 4 に示す。尚、実施例 4 については、揮発性発泡剤として実施例 1 で使用したイソブタンを、イソブタン 30 重量%とノルマルブタン 70 重量%との混合揮発発泡剤に代えて使用した。

【0084】

実施例 7

表 2 に示す発泡成形体の発泡層形成用樹脂及び、表 3 に示す発泡成形体の樹脂層形成用樹脂を用い、揮発性発泡剤を樹脂 B 100 重量部に対して 1.8 重量部とした以外は実施例 1 と同様にして得た多層パリソンから、実施例 1 で用いた金型とは別の金型を用いた以外は実施例 1 と同様にして発泡成形体を得た。得られた発泡成形体は実施例 1 と同様の良好な外観を有していた。また、この発泡成形体は、多層パリソンにおける樹脂発泡層の内面同士が隙間なく良好に融着している発泡成形体であった。得られた発泡成形体の諸物性を表 2 ～ 表 4 に示す。尚、実施例 7 においては、多層パリソンを成形するための箱形状の多分割式の金型により、開口部外形寸法 300 mm × 230 mm、高さ 120 mm、容器肉厚約 20 mm の直方体形状の容器状発泡成形体を得た。

【0085】

比較例 1

表 2 に示す発泡成形体の発泡層形成用樹脂及び、表 3 に示す発泡成形体の樹脂層形成用樹脂を用い、実施例 1 と同様にして多層パリソンを得、それを成形して発泡成形体を得た。得られた発泡成形体は樹脂層の一部に破れが生じ、ところどころ発泡層が表面に露出していた。得られた発泡成形体の諸物性を表 2 ～ 4 に示

す。

【0086】

比較例 2 ～ 3

表 2 に示す発泡成形体の発泡層形成用樹脂及び、表 3 に示す発泡成形体の樹脂層形成用樹脂を用い、実施例 1 と同様にして、多層パリソンの製造を試みたが、気泡が破泡して樹脂発泡層が収縮してほとんど発泡せず、良好な多層パリソンは得られなかった。この多層パリソンを実施例 1 と同様に成形したが、発泡成形体は得られなかった。

【0087】

【発明の効果】

本発明の発泡成形体は、上記構成を採用したことにより、多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体を構成するポリプロピレン系樹脂発泡層の肉厚、密度を広い範囲で任意に選択または調節することができるものであり、高厚み、高倍率の発泡層を有するものとすることもできる。また、該発泡成形体を構成するポリプロピレン系樹脂層は厚みが均一で、表面に鱗状の模様、亀裂や穴が発生することなく、外観の良好な発泡成形体である。

【0088】

本発明の発泡成形体の製造方法は、樹脂発泡層の少なくとも外面に樹脂層を有する多層パリソンを、該パリソン最内面同志が少なくとも一部において融着するように成型にて成形するものであるから、発泡層の表面に表面層を有する構成の多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体を得る従来法のような複雑な製造工程や装置も不要であり、また特定のポリプロピレン系樹脂を基材樹脂とすることにより、多層パリソンの樹脂層の伸び、ドローダウン性等を改善するとともに、樹脂発泡層の発泡性、ドローダウン性等を改善し、従来多層パリソンを成形する方法では得ることが難しかった多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体が生産性良く得られる。

【0089】

更に本発明の発泡成形体は、軽量性、耐熱性、耐薬品性、リサイクル性、断熱性、緩衝性、防振性、圧縮、引張、曲げ等の機械的強度に優れたものである。ま

た本発明の発泡成形体は、深絞り成形物や大型成形物としても好適なものであり、リターナブル容器をはじめ床やドアなどの軽量断熱パネル、パレット、ピラーやバンパー、インスツルメントパネルなどの自動車部材、机、いす、フロート、サーフボード等に利用できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の発泡成形体の一例を示す縦断面図である。

【図 2】

本発明の発泡成形体の製造に用いる多層パリソンの一例を示す一部切欠斜視図である。

【図 3】

溶融張力の測定における、溶融張力と時間又は巻き取り速度との関係を示すグラフである。

【図 4】

本発明発泡成形体の製造方法の一工程を示す説明図である。

【図 5】

本発明発泡成形体の製造方法の一工程を示す説明図である。

【図 6】

本発明発泡成形体の製造方法の異なる態様を示す説明図である。

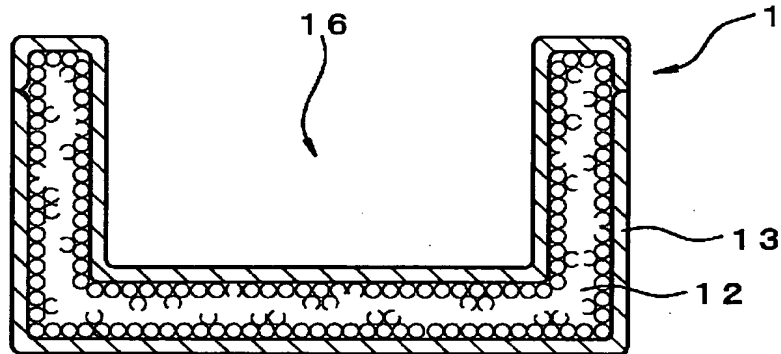
【符号の説明】

- 1 ポリプロピレン系樹脂多層発泡成形体
- 2 樹脂発泡層
- 3 樹脂層
- 6 多層パリソン
- 1 2 ポリプロピレン系樹脂発泡層
- 1 3 ポリプロピレン系樹脂層

【書類名】 図面

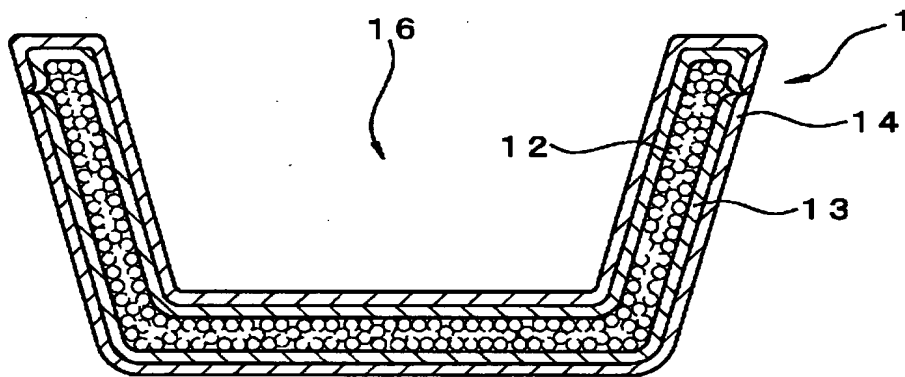
【図 1】

(a)

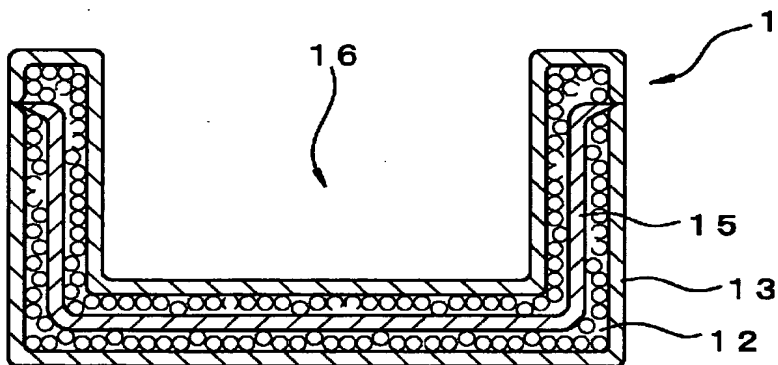


- 1 ポリプロピレン系樹脂多層発泡成形体
- 12 ポリプロピレン系樹脂発泡層
- 13 ポリプロピレン系樹脂層

(b)

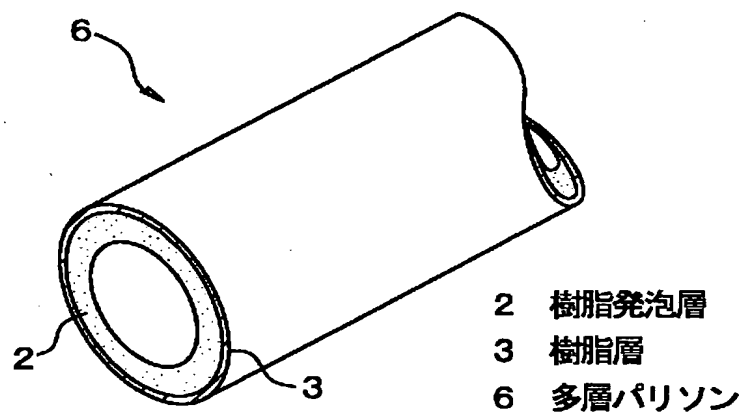


(c)

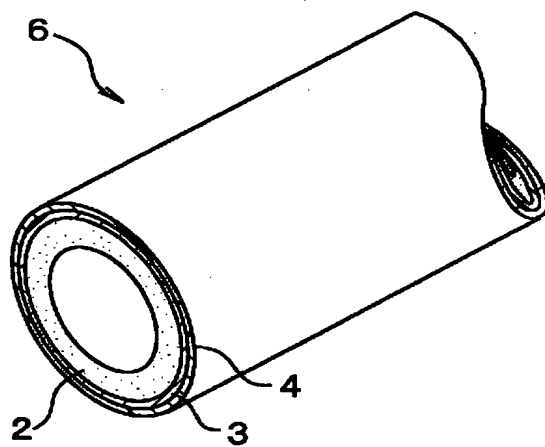


【図 2】

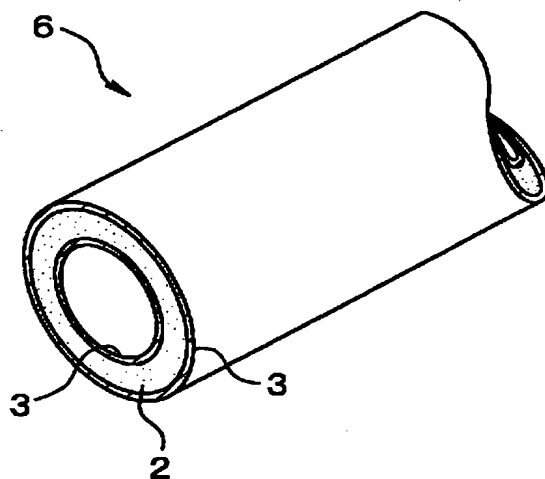
(a)



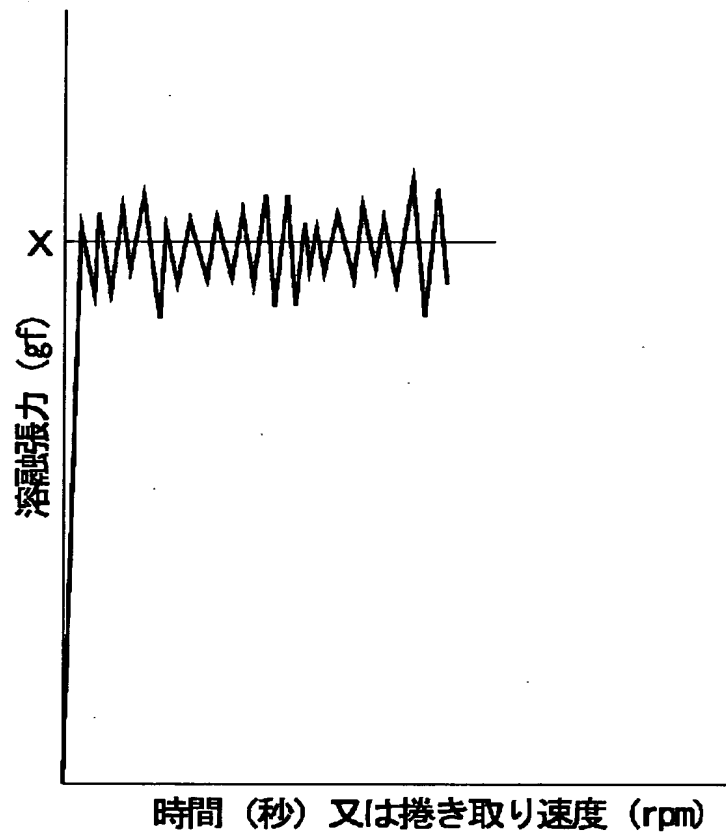
(b)



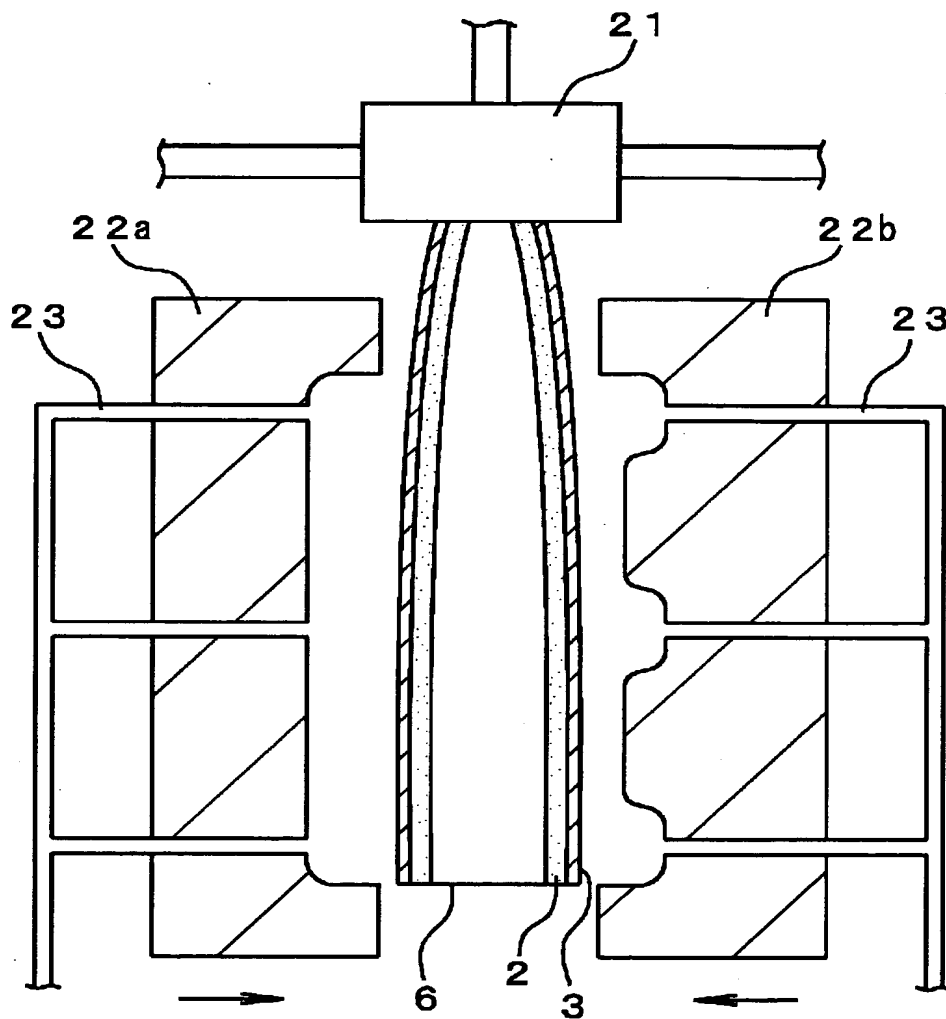
(c)



【図 3】

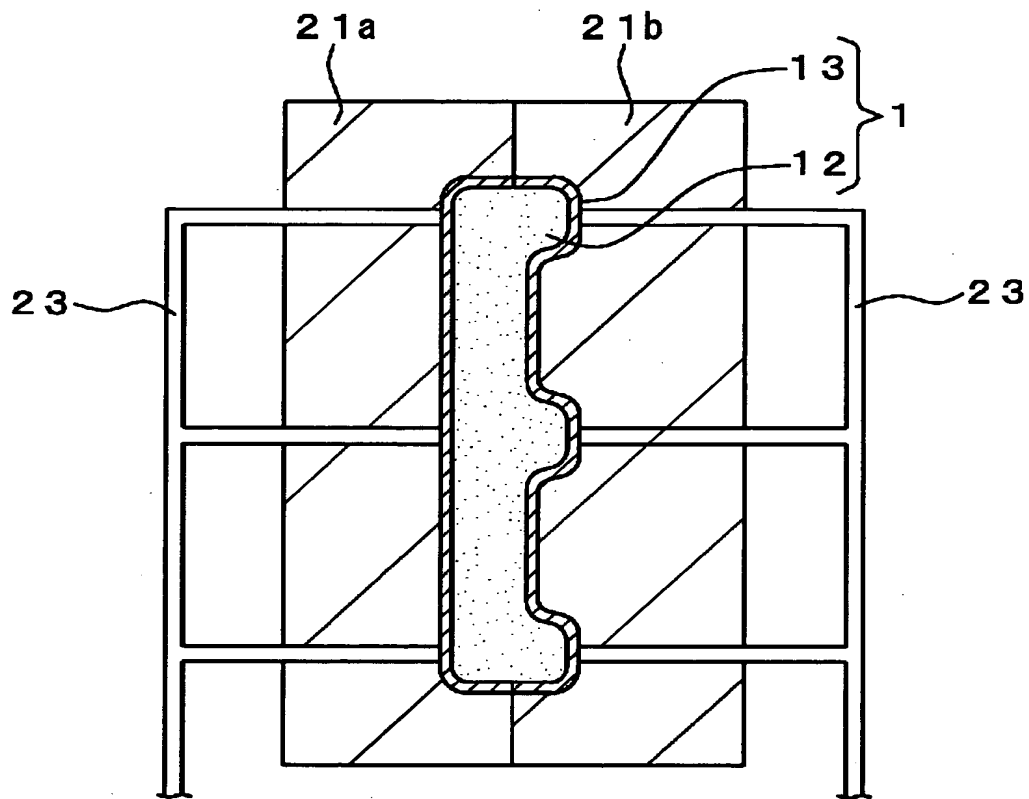


【図 4】



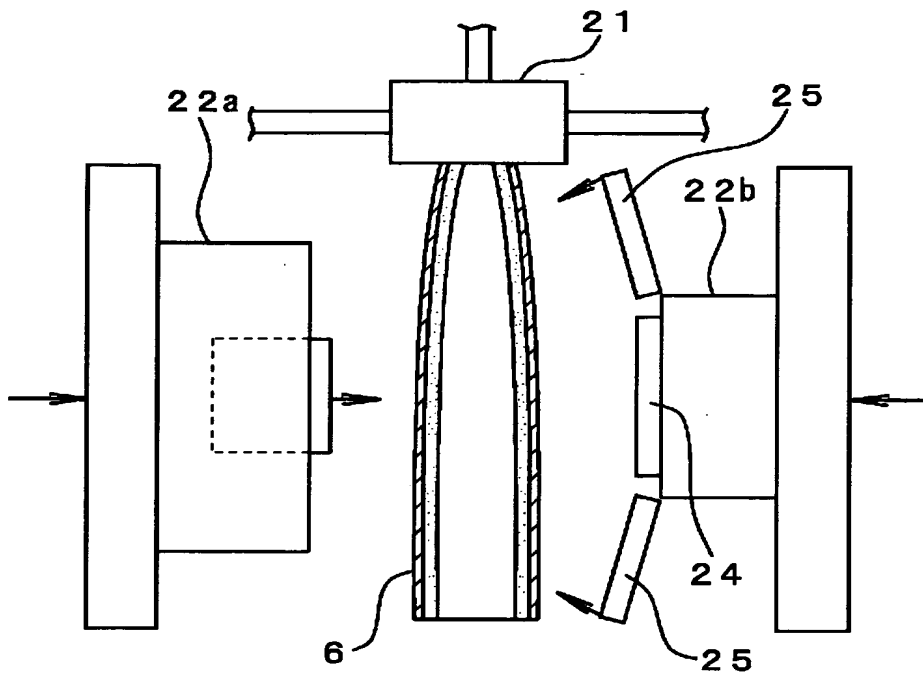


【図 5】

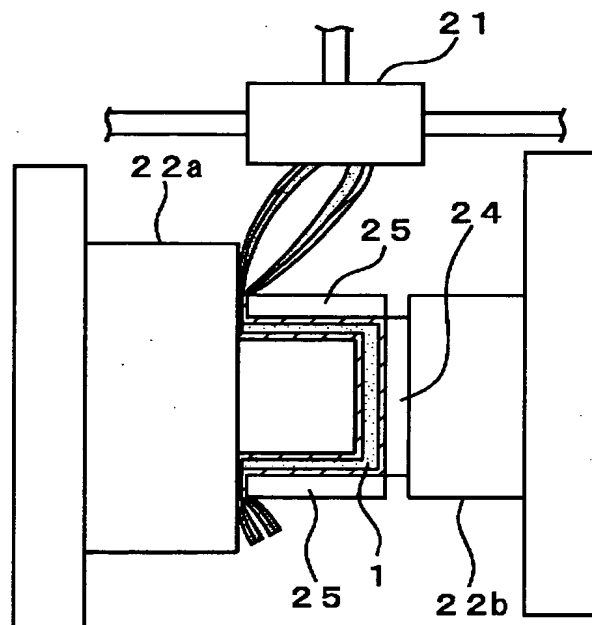


【図 6】

(a)



(b)



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 複雑な製造工程や装置を必要とせず、効率よい生産が可能であり、軽量性、耐熱性、耐薬品性、リサイクル性、断熱性、緩衝性、防振性、圧縮、引張、曲げ等に優れた、ポリプロピレン系樹脂発泡層の表面に外観良好なポリプロピレン系樹脂層を備えた構成の多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体を提供する。

【解決手段】 本発明の多層ポリプロピレン系樹脂発泡成形体 1 は、樹脂発泡層の少なくとも外面に樹脂層を有する多層パリソンを、該パリソンの最内面同志が少なくとも一部において融着するように成型型にて成型して得られる、ポリプロピレン系樹脂の発泡層 1 2 の表面にポリプロピレン系樹脂層 1 3 を有する発泡成形体 1 であって、該発泡層 1 2 を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／10分）とが下記（1）式の関係を満たすとともに、表面層 1 3 を形成しているポリプロピレン系樹脂より測定される MFR（g／10分）と MT（gf）とにおいて、MFR が 0.3（g／10分）以上であって、溶融張力：MT（gf）とメルトフローレイト：MFR（g／10分）とが下記（2）式の関係を満たすか、MFR が 0.2（g／10分）以上、0.3（g／10分）未満であって、MT が 10（gf）以上であることを特徴とする。

【数 1】

$$\log MT > -0.74 \log MFR + 0.66 \quad \dots (1)$$

【数 2】

$$\log MT > -1.02 \log MFR + 0.47 \quad \dots (2)$$

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000131810]

1. 変更年月日 1990年 8月13日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区内幸町2-1-1 飯野ビル

氏 名 株式会社ジェイエスピー